

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 2002-072266

(43)Date of publication of application : 12.03.2002

(51)Int.Cl. G02F 1/37
 G02B 1/02
 G02F 1/03
 G02F 1/29
 G02F 1/355
 G02F 1/39

(21)Application number : 2000-255102

(71)Applicant : NATIONAL INSTITUTE FOR
 MATERIALS SCIENCE
 FURUKAWA YASUNORI
 KITAMURA KENJI
 TAKEGAWA SHUNJI

(22)Date of filing : 25.08.2000

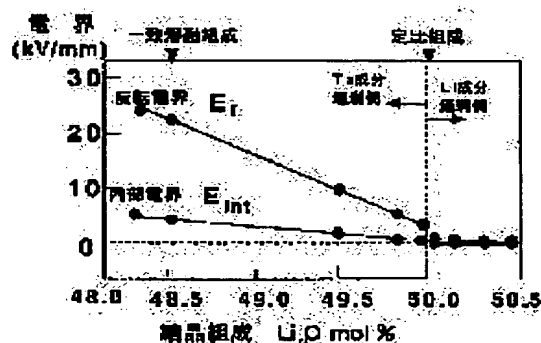
(72)Inventor : FURUKAWA YASUNORI
 KITAMURA KENJI
 TAKEGAWA SHUNJI

(54) OPTICAL FUNCTIONAL ELEMENT USING FERROELECTRIC POLARIZATION INVERSION OF LITHIUM TANTALATE

(57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide an optical functional element in which the controllability of a polarization inversion structure is improved and the resistance against optical damage is further improved.

SOLUTION: The following optical elements (1) to (3) or the like can be realized by using a single crystal of lithium tantalate having nearly a stoichiometric composition with excess Li and 0.500 to 0.505 mole fraction of $\text{Li}_2\text{O}/(\text{Ta}_2\text{O}_5+\text{Li}_2\text{O})$ for the substrate. The elements are (1) an optical functional element which converts the wavelength of incident laser light having the wavelength in the visible to near IR region into shorter or longer wavelength by periodically reversing the polarization structure of the lithium tantalite single crystal, (2) an optical memory element or optical circuit element to record various kinds of information in the single crystal by forming polarization reversal in a minute region in the lithium tantalate single crystal in a single polarization state, and (3) an optical element which controls the laser light incident to the single crystal by using the electro-optical effect of the single crystal and which deviates, focuses or switches the light by using the large change in the refractive index in the reversal structure of the ferroelectric polarization of the lithium tantalite single crystal.



(19) 日本特許庁 (J P) (12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号
特開2002-72266
(P2002-72266A)
(43) 公開日 平成14年3月12日(2002.3.12)

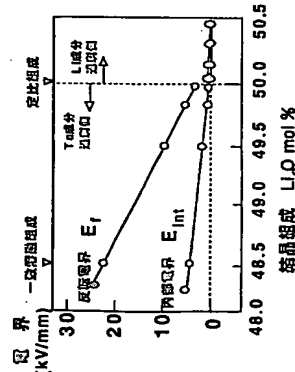
機別記号		F I		チーロード(参考)	
(5) Int.Cl. ⁷	G 0 2 F 1/37	G 0 2 F 1/37		2 H 0 7 9	
	G 0 2 B 1/02	G 0 2 B 1/02		2 K 0 0 2	
	G 0 2 F 1/03	G 0 2 F 1/03		5 0 1	
	1/29	1/29			
	1/355	1/355			

審査請求 有 請求項の数 6 O L (全 12 頁) 最終頁に続く

(21) 出願番号	特願2000-255102(P2000-255102)	(71) 出願人	301022238 独立行政法人物質・材料研究機構
(22) 出願日	平成12年8月25日(2000.8.25)	(71) 出願人	500121821 古川 保典
特許法第30条第1項適用申請有り 2000年6月10日 (社) 応用物理学会発行の「応用物理学雑誌第5号」に 発表		(71) 出願人	500121895 埼玉県深谷市上郷町西四丁目17番地15号
		(71) 出願人	500121843 北村 健二
		(71) 出願人	500121843 茨城県つくば市吾妻四丁目13番地1号
		(71) 出願人	500121843 竹川 俊二
		(71) 出願人	500121843 茨城県つくば市吾妻二丁目11番地301棟403号
		最終頁に続く	

(54) (発明の名称) タンタル酸リチウム単結晶の強誘電分極反転を利用した光機能素子

(57) 【要約】
【効果】 分極反転促進の制御性を向上し、さらに耐光照射性を向上した光機能素子を提供できる。
【構成】 Li過剰のストイキオメトリ組成に近いLi₂O/(Ta₂O₅+Li₂O)のモル分率が0.500~0.505であるタンタル酸リチウム単結晶を基板に用いると、(1) タンタル酸リチウム単結晶の分極構造を周期的に反転させ、可視から近赤外域の波長を持った入射レーザーの波長を短波長化あるいは長波長化させる光機能素子 (2) 単一分極状態にあるタンタル酸リチウム単結晶に微小領域で分極反転を形成し、分極反転させることで種々の情報を単結晶内に記憶する光記憶素子あるいは光回路素子、(3) 単結晶の電気光学効果を利用して単結晶内に入射されたレーザー光を制御する光素子であって、タンタル酸リチウム単結晶の強誘電分極を反転構造の大きな屈折率変化を利用して光の偏向、焦点、スライッシングを行う光素子などを発明できる。



【特許請求の範囲】

【請求項1】 タンタル酸リチウム単結晶の分極構造を周期的に反転させ、可視から近赤外域の波長を持った入射レーザーの波長を短波長化あるいは長波長化させる光機能素子において、Li過剰のストイキオメトリ組成に近いLi₂O/(Ta₂O₅+Li₂O)のモル分率が0.500~0.505であるタンタル酸リチウム単結晶を基板に用いたことを特徴とする光機能素子。

【請求項2】 単一分極状態にあるタンタル酸リチウム単結晶に微小領域で分極反転を形成し、分極反転させることで種々の情報を単結晶内に記憶する光記憶素子あるいは光回路素子において、Li過剰のストイキオメトリ組成に近いLi₂O/(Ta₂O₅+Li₂O)のモル分率が0.500~0.505であるタンタル酸リチウム単結晶を基板に用いたことを特徴とする光機能素子。

【請求項3】 単結晶の電気光学効果を利用して単結晶内に入射されたレーザー光を制御する光素子であって、タンタル酸リチウム単結晶の強誘電分極の反転構造の大きな屈折率変化を利用して光の偏向、焦点、スライッシングを行う光素子において、Li過剰のストイキオメトリ組成に近いLi₂O/(Ta₂O₅+Li₂O)のモル分率が0.500~0.505であるタンタル酸リチウム単結晶を基板に用いたことを特徴とする光機能素子。

【請求項4】 上記のストイキオメトリ組成に近いタンタル酸リチウム単結晶を用いた光機能素子は、基板となるタンタル酸リチウム単結晶のキュリー温度が686~695℃の範囲であることを特徴とする請求項1~3のいずれかに記載の光機能素子。

【請求項5】 前記のストイキオメトリ組成に近いタンタル酸リチウム単結晶基板は、分極反転に必要とする印加電圧が2kV/mm以下であることを特徴とする請求項1~4のいずれかに記載の光機能素子。

【請求項6】 前記のストイキオメトリ組成に近いタンタル酸リチウム単結晶基板は、波長407nmの連続波レーザー照射に対して103kW/cm²以上の高光強度値を持つことを特徴とする請求項1~4のいずれかに記載の光機能素子。

【発明の詳細な説明】

【0001】
【発明の属する技術分野】 本発明は、レーザー光を利用した光情報処理、光加工技術、光化学反応技術、光計測制御等々の分野で利用するタンタル酸リチウム (LiTaO₃) (以下Liと略記する) 単結晶からなる光機能素子に関する。特に、Li単結晶の分極を周期的に反転させ、レーザー光の基本波長を短波長化あるいは長波長化する波長変換素子、および、分極反転構造の大きな屈折率変化を利用する光の偏向、焦点、スライッシングを行う素子、およびLi単結晶の微小領域の分極を反転させることを記録に用いる光記憶素子および光回路素子に関するものである。

【0002】

【従来の技術】 Li単結晶は、主に、表面弾性波素子や電気機器の基板として使用されている強誘電体であるが、可視から赤外の広い波長域で透明であり、電圧を印加することで周期的な分極構造を作成でき、ある程度実用的な光学的非線形性と電気光学特性を有し、さらに、大口徑で組成均質性の高い単結晶が比較的安価で供給可能なことから、近年、波長変換素子などの機能素子の基板としても注目されている。

【0003】 特に、近赤外波長の半導体レーザーを非線形光学効果により半波長の青色光に変換する波長短縮型の光第二高調波発生 (SHG) 素子の開発が期待されており、なかでも、光ディスクの高密度記録・再生用光源として、LiN、LiT、KTPなどの無電解質結晶の分極構造を周期的に反転した素子を用いたSHG素子は最も良く研究されている。

【0004】 このSHG素子は、擬位相整合 (Quasi Phase Matching: QPM) 方式によるもので、基本波と高調波の伝播定数の差を周期的構造で補償して位相整合をとる方式である。この方式では高い変換効率が得られること、出力光の平行ビーム化・回折限界幅が容易であること、適用できる材料や波長に制限がないことなど、多くの優れた特徴を持っている。

【0005】 QPMのための周期的構造としては、SHG低級数 (d係数) の符号を周期的に反転した構造が高い効率を得る上で最も有効であり、強誘電体結晶ではd係数の正負は強誘電体分極の極性に対応するので、強誘電分極メインの周期反転構造が利用されている。QPM-SHG方式では、複屈折を利用した位相整合方式では使えない非線形光学定数d₂₂やd₃₃等も使えるために高効率の波長変換ができることは大きなメリットと考えられる。

【0006】 特に、Li単結晶は、LiN単結晶と並ぶ大きな非線形光学定数 (d₃₃が26pm/V) を持ち、LiN単結晶に比べて光損傷に強く、また、基礎吸収域が280nmまで伸びており、短波長の波長変換材料として有望である。

【0007】 また、電気光学効果を利用した光学素子においては、例えば、文献 (M. Yamada et al., Appl. Phys. Lett., 69, p3559, 1996) によると、強誘電体結晶中にレンズやプリズム状の分極反転構造を形成し、これを通したレーザー光を電気光学効果を利用して偏向する光素子やシリンドリカルレンズ、ビームスキャナー、スイッチなどが新しい光素子として注目され、Li単結晶も基板材料として有望とされている。

【0008】 これまで販売されているLi単結晶は、融点約1650℃、キュリー温度約600℃の強誘電体結晶で、通常、若干の酸素を含み還元雰囲気中でイリジウム箔箔内で溶かした融液からチヨウラルキ一法により育成されている。Li単結晶の詳細な相図は報告されていないが、例えば、文献 (S. Miyazawa et al., J. Crystal

Growth 10, p276, 1971) に示された相図によると、LN 単結晶と同様に定比組成（化学量論組成）とコングレート組成（一致溶融組成）は一致しないことは良く知られている。

【0009】コングレート組成のみが融液組成と結晶組成とが一致し、結晶全体にわたって均一組成の結晶を育成することが出来る組成であるため、現在、各種用途に製造、使用されている結晶は、全て $\text{Li}_2\text{O}/(\text{TeO}_5 + \text{Li}_2\text{O})$ のモル分率が 0.4830～0.4853 のコングレート組成の結晶である。

【0010】特に、工業的な面から安面で大口径の LT 結晶を供給するために、精密に管理されたコングレート組成融液から育成することが重要であるため、組成に敏感な結晶のキュリー温度を、例えば、60℃に対して1℃以内に管理することで、LT 単結晶のコングレート組成は結晶育成の全行程において、 $\text{Li}_2\text{O}/(\text{TeO}_5 + \text{Li}_2\text{O}) = 0.4830 \sim 0.4853$ の間で精密に決められている。

【0011】しかし、従来のコングレート組成 LT 単結晶は Te 成分が過剰であるため、数%に達する Te オランが Li オランを置き換えているし（アンチサイト欠陥）、Li オランサイトにも数%の空位欠陥をもたれている。この影響は表面変性変素子応用としては深刻でないとしても、光電素子応用には無視することはできない。【0012】このため、光電素子応用への基板として、定比に近い組成を持つ結晶の開発が望まれていた。文献 (S. Miyazawa et al., J. Crystal Growth 10, p276, 1971) に示された相図からわかるように、Li 濃度が定比よりも低い組成の融液から定比に近い組成の結晶が析出できる。

【0013】しかし、従来から大口径の LT 結晶を工業的に大量生産する手段として使用されているチヨウラルスキー法を用いて定比組成結晶を育成しようとした場合には、結晶の析出に伴って Li 成分の過剰分が析出域に凝集することになり、融液の Li と Te の組成比が徐々に変化するため、育成開始後すぐに融液組成比は共晶点に至ってしまう。このため、結晶の固化率はわずかに 10%程度に制限され、析出した結晶の品質も光電素子応用に使用できるものではない。

【0014】本発明者は、従来の市販されているコングレート組成の LT 結晶と異なる新規物質として、コングレート組成の不定比欠陥濃度を大幅に低減した $\text{Li}_2\text{O}/(\text{TeO}_5 + \text{Li}_2\text{O})$ のモル分率が 0.495～0.50 の Te 過剰の定比組成に近いタンタル酸リチウム単結晶の発明をなし、特許出願した（特開平11-35393号公報）。また、この新規結晶に関して下記のように文献報告した。

【0015】この不定比欠陥を低減して高品質結晶を開発する手段として、本発明者は、原料を理論的に供給しながら育成する方法（以後逆焼供給法と略記する）を提案した（例えば、Y. Furukawa et al., J. Crystal Growth 197, p89, 1999）。具体的に、育成融液の $\text{Li}_2\text{O}/\text{TeO}_5$

$(\text{TeO}_5 + \text{Li}_2\text{O})$ のモル分率を Li 成分の過剰の 0.58 00～0.59 00 とし、つづいて二重揮発によって内側の方のつぼから定比組成に近い LT 結晶を引き上げ、引き上げている結晶の重量を同時測定することで成長レート求め、そのレートで結晶と同じ定比組成の成分の原料粉末を外するつぼと内側の間に連続的に供給するという方法である。

【0016】この方法を用いることで、長さの結晶育成が可能となり、原料供給口に対して100%の結晶固化率を実現している。この方法で育成された結晶は、キュリー温度が 675～685℃と、従来のコングレート組成結晶のキュリー温度の 60℃よりはるかに高温にあり、Te 過剰の定比組成に近いタンタル酸リチウム単結晶が得られたことが報告されている。

【0017】さらに、最近、本発明者は、上記の Te 過剰の定比組成に近い結晶では、分極反転に要する印加電圧が従来の 10 分の 1 程度で済むことを報告した (K. K. Itamura et al., Appl. Phys. Lett. 73, p3073, 1998 や古川保典他、第43回人工結晶討論会講演要旨集 IA12、第23頁、1998年)。すなわち、従来のコングレート組成結晶における数%の不定比欠陥（アンチサイト欠陥や空位欠陥）の存在が、LT 結晶が本来有する光学特性や、周期的な分極構造を作成するのに必要な印加電圧を高くしている可能性があることを報告している。

【0018】また、コングレート組成 LT 単結晶では、結晶毎による耐光損傷閾値が数桁以上もばらつくことが知られており、Te 過剰の定比組成に近いタンタル酸リチウム単結晶では、従来のコングレート組成に較べると、波長 532nm の緑色光レーザー照射に対して耐光損傷閾値が向上し、結晶毎のばらつきも若干小さくなることが報告されている（例えば、古川保典他、第60回応用物理学学会学術講演会講演予稿集 2b-72-1、第3分冊、1001頁、2000年）。

【0019】さらに、波長 532nm の緑色光レーザー照射に対して、 $\lambda/20$ の添加した定比組成に近い LT 単結晶は、従来のコングレート組成よりも優れた耐光損傷閾値を示すことが知られている（例えば、宮本英男他、4回人工結晶討論会講演要旨集 27A、第15頁、1998年）。また、いずれの組成でも、Te 過剰 LT 単結晶の光損傷は、照射するレーザの波長が短くなると発生しやすくなり、波長が 400nm 近傍での耐光損傷閾値は波長 532nm での耐光損傷閾値よりも 2 桁以上も低下することが知られている。

【0020】Te 過剰の定比組成に近いタンタル酸リチウム単結晶、定比組成に近い LT 単結晶（キュリー温度が 680～685℃）を用いた疑似位相整合（Quasi-Phase-Matching：QPM）素子としての近赤外線バルク QPM 素子の研究が報告されている（例えば、如中孝明他、第60回応用物理学学会学術講演会講演予稿集 2b-4-7、第3分冊、932頁、1999年）。z カットの一致溶融組成の LT 単結晶の片面に

周期電極を反対面に一様電極を設けて、この電極を通じて数 kV/mm 程度のバリス電圧を印加することで厚さ 1～2mm の近赤外線バルク QPM 素子が比較的容易に作成できている。しかし、分極反転の均一化が困難であるために、素子作成は数枚の面積における分極反転構造の形成に限られ、大面積に亘り分極反転を形成できるまでには至っていない。

【0021】さらに、本発明者が先に発明した Te 過剰の定比組成に近い LT 単結晶を基板に用いて結晶基板厚みが 3mm の QPM 素子作成を検討した報告（中村孝一朗他、第47回応用物理学学会学術講演会講演予稿集 30b-72-3、第3分冊、1105頁、2000年）によると、分極反転制御はより困難になり、これを基板に用いたバルク QPM 素子は得られていない。

【0022】発明が解決しようとする課題】強誘電体単結晶基板上の分極反転構造を用いた波長変換光電素子を製造する上で最も重要な技術は、周期的分極反転構造を精度よく生成する技術である。QPM 構造を用いた波長変換素子では、QPM 条件の許容度が大幅に狭いために、形成された素子の反転周期の不完全さがあると小型で高効率の素子を実現できなくなってしまう。分極反転形成方法として電圧印加がよく知られており、一般的によりよく使用されているが、分極反転幅は完全な 1:1 や 1:3 などには形成するのは非常に難しく、プロセスの再現性にも問題がある。

【0023】例えば、電圧印加法では z カットの LT 単結晶の片面に周期電極を反対面に一様電極を設けてこの電極を通じてバリス電圧を印加することで周期電極直下の部分を軸方向に向けて分極反転させるが、反転分極幅と電極幅は必ずしも一致するとは限らず、その作製誤差も大きい。

【0024】特に、分極反転部の幅方向の拡大は、再現性良く素子を作成する上で大きな問題とされていた。また、反対面の z 軸方向に分極反転が形成される途中、反転が途切れたり、分極反転幅がカット結晶の両面で異なるなどの問題も発生し、これまで、理論的な形で QPM 素子の実現には至っていない。特に、従来のコングレート組成 LT 単結晶の場合には、分極反転に必要な印加電圧は 20kV/mm 以上と高電圧が必要となるため、反転できる基板厚も 0.5mm 以下と限られ、1mm 以上のドーム後の高出カレー素子への応用はきわめて困難とされていた。

【0025】これに対し、本発明者が先に発明した、Te 過剰の定比組成に近い LT 単結晶を基板に用いることで、厚さ 1～3mm の近赤外線バルク QPM 素子の作成が検討されているが、分極反転の均一化が困難であるために、素子作成は数枚の面積における分極反転構造の形成に限られ、大面積に亘り分極反転を形成できるまでには至っていない。

【0026】また、強誘電体単結晶の電気光学効果を利した光変調素子や、LT 単結晶に形成されたレンズやプリズム状の分極反転構造を製作し、これを通してレーザ光を電気光学効果を利用して屈折する光素子やシリンドリカルレンズ、ビームスキャナ、スイッチなども新しい光素子などを実現する上で重要なことは、小型で高効率の素子を作成することである。分極反転構造による屈折率の反転を形成した単結晶の電気光学効果を利用した光素子の性能は、レンズやプリズム状の分極反転構造の設計や分極反転構造の製作プロセスの精度、および材料の持つ電気光学定数の大ききで決定される。

【0027】しかしながら、従来のコングレート結晶を用いた場合には、QPM 素子を作成するのと同じような自発分極の反転の制御が難しいという材料特性の問題が依然として残されているため、精度の良いレンズやプリズム状の分極反転構造の作製は実現されていなかった。

【0028】また、一致溶融組成 LT 結晶は、LN 単結晶よりも耐光損傷性は大きいとされているが、使用する光の波長や強度によっては、それでも、まだ、耐光損傷性が十分ではない場合が多い。本発明者は、Te 過剰の定比組成に近い LT 単結晶では、従来のコングレート組成に較べると、波長 532nm の緑色光レーザー照射に対して耐光損傷閾値が向上することを報告した（古川保典他、第60回応用物理学学会学術講演会講演予稿集 2b-72-1、第3分冊、1001頁、2000年）が、依然として、結晶毎に耐光損傷閾値は 3 桁以上もばらつきがあり、その原因は良く解明されていなかった。

【0029】このために、これまでに若干の Te 過剰成分例（ $\text{Li}_2\text{O}/(\text{TeO}_5 + \text{Li}_2\text{O})$ のモル分率が 0.495～0.50）にある結晶では、安定して光損傷に強い結晶を提供するためには、 $\lambda/2$ などの添加物を加えることが必要であった。しかし、 $\lambda/2$ を含んだ LT 単結晶の生産において、 $\lambda/2$ 元素を結晶内に均一に分布させ、光学的品質を劣化させずに結晶を育成するためには、無添加結晶の場合に較べて結晶育成速度を遅くしなければならず、生産性が悪くなるという問題があった。また、 $\lambda/2$ を添加した定比組成に近い LT 単結晶は、耐光損傷性に優れたものの、分極反転の制御性が低い温度に依存するため、無添加の定比組成に近い LT 単結晶よりも分極反転構造を持つ光電素子を作成し、再現性よく作成するのが難しくなるという新たな問題もでてきた。

【0030】さらに、耐光損傷性は、使用する光が可視から紫外の短波長光域になると更に厳しい問題となる。従来の LT 単結晶の光損傷は、照射するレーザの波長が短くなると発生しやすくなり、波長が 400nm 近傍での耐光損傷閾値は、波長 532nm での耐光損傷閾値よりも 2 桁以上も低下することは短波長への光電素子応用上大きな問題であった。

【0031】このことから、不定比欠陥を全く含

まない完全なしで単結晶を開発することが、これらの問題を解決する手段として期待されるが、原料運供給二重なるつぼ法を用いても、結晶全体や結晶ロット間のばらつきなく完全結晶を育成することは難しく、歩留まりが低下し、バルクの結晶を工業的に生産することは達成されていない。

【0032】一方、河原または0.5mm程度の厚みの定比組成結晶を開発手段としてコングレント結晶基板上にLi処理を加える方法、またはコングレント結晶基板にVapor Transport Equilibration処理を加える方法は、結晶組成をより定比組成に近づけやすい方法として知られているが、これらの場合でも液相の組成や圧温度、あるいはVTE処理温度により結晶組成は変動し、やはり、全く欠陥がない完全結晶を工業的に製造するには問題がある。

【0033】

【課題を解決するための手段】本発明者は、前記従来の問題を解決するため、ストイキメトリ組成のLi結晶の特性説明を鋭意継続していたところ、Li過剰のストイキメトリ組成のLi結晶が分極反転組成の制御性を向上し、さらに耐光劣性を向上するという光機能素子として優れた特性を有することを発見した。

【0034】すなわち、本発明の光機能素子は、タンタル酸リチウム単結晶の分極組成を周期的に反転させ、可視から近紫外域の波長を持った入射レーザの波長を短波長のあるいは長波長化させる光機能素子において、Li過剰のストイキオメトリ組成に近いLi₂O/(Ta₂O₅+Li₂O)のモル分率が0.500~0.505であり、タンタル酸リチウム単結晶を基板に用いたことを特徴とする。

【0035】また、本発明の光機能素子は、単一分極状態にあるタンタル酸リチウム単結晶に微小相領域で分極反転を形成し、分極反転させることで種々の情報を単結晶内に記憶する光記素子あるいは光回素子において、Li過剰のストイキオメトリ組成に近いLi₂O/(Ta₂O₅+Li₂O)のモル分率が0.500~0.505でありタンタル酸リチウム単結晶を基板に用いたことを特徴とする。

【0036】また、本発明の光機能素子は、単結晶の電気光学効果を利用して単結晶内に入射されたレーザ光を制御する光素子であって、タンタル酸リチウム単結晶の強誘電分極を反転組成の大きな屈折率変化を利用して光の屈折、焦点、スイッチングを行う光素子において、Li過剰のストイキオメトリ組成に近いLi₂O/(Ta₂O₅+Li₂O)のモル分率が0.500~0.505でありタンタル酸リチウム単結晶を基板に用いたことを特徴とする。

【0037】また、前記光機能素子においては、基板となるタンタル酸リチウム単結晶においては、基板と95℃の範囲内であることが好ましい。

【0038】前記光機能素子においては、タンタル酸リチウム単結晶基板の分極反転に必要とする印加電圧が3kV/mm以下であることが好ましい。

【0039】また、前記光機能素子においては、タンタル酸リチウム単結晶基板の耐光損傷閾値が、波長407nmの連続赤外線レーザ照射に対して103kW/cm²以上であることが好ましい。

【0040】本発明者らは、Li単結晶を利用した光機能素子における分極反転や光損傷制御の問題点は単結晶基板の組成にあることを突き止めた。本発明は、Li結晶の分極反転構造を利用した光機能素子用途として、ある組成範囲にあるLi結晶単結晶基板に着目した点にある。Li₂O/(Ta₂O₅+Li₂O)のモル分率が0.50より大きくLi成分が過剰な定比に近いLi単結晶が従来の特性と異なり、優れた分極反転制御性を持つことが、本発明者らによって初めて思いだされた。

【0041】さらに、Li結晶の組成を、Li₂O/(Ta₂O₅+Li₂O)のモル分率が0.50より大きくLi成分過剰とすることで、光機能素子の耐光損傷特性を大幅に向上させることが可能になった。これを利用することで、短波長光に適用する光機能素子の特性も飛躍的に向上することが明らかになった。

【0042】今回見いだされた分極反転特性や耐光損傷特性についても、このモル分率を有するLi単結晶特有の効果である。定比組成に近いLi単結晶は、原料運供給二重組成法によって、最近、ようやく、光学的均質な基板の作製が可能になった結晶であり、その光学特性については、未だ総てが明らかにされていない。特に、定比よりもLi成分過剰のLi結晶基板の光学特性については、本発明者が初めて明らかにしたものである。また、この特性を利用した光機能素子特性の大幅な向上については、さらに未開拓な分野であった。

【0043】

【発明の実施の形態】本来、Li単結晶の理想組成は、Li:Ta比が1:1であるが、従来から市販されてきたコングレント組成した単結晶基板は、単結晶育成技術の制約から多量のTa成分過剰のものである(Li₂O/(Ta₂O₅+Li₂O)のモル分率が約0.485)。一方、原料運供給二重組成法によって、Li成分過剰(例えば、Li₂O/(Ta₂O₅+Li₂O)のモル分率が0.58~0.60)の組成から開発された定比組成に近い組成のLi結晶も、まだ若干Ta成分が過剰な例(Li₂O/(Ta₂O₅+Li₂O)のモル分率が0.495~0.50)にある。

【0044】本発明者らは、組成の組成を著しくLi成分過剰(Li₂O/(Ta₂O₅+Li₂O)のモル分率が0.60~0.67)にした組成から結晶を育成すると、Li成分が過剰な定比組成に近い(Li₂O/(Ta₂O₅+Li₂O)のモル分率が0.50より大きい)Li単結晶が育成でき、Ta成分過剰による不定比欠陥速度を抑えた単結晶が光機能素子基板として優れた特性を示すことをはじめて明らかにしたものである。

【0045】すなわち、従来の結晶における過剰なTaにより形成される多量の欠陥が、光機能素子応用にとって大きな問題を引き起こすことを見出した。この欠陥の

存在によって、分極反転に必要な印加電圧と自費分極の関係を示すヒステリシス曲線は非対称的になり、しかも、分極反転には数十kV/mmの高電圧が必要とされることがわかった。さらに、結晶内部で欠陥が不均一に分布しており欠陥密度が高いうような箇所では分極反転がピンニングされやすいために、電圧印加法を用いても精度よく分極反転することが技術的に困難であるということが明らかになった。

【0046】Li単結晶では、キュリー温度より高温の常誘電相において、Li、Taイオンは電気的中性位置に配置しているが、キュリー温度以下の強誘電相では、LiおよびTaイオンがイタムと-z2方向に少しずれる。このイオンのずれの方向によってドメインの正負の分極方向が決定されている。分極反転構造を持つ光機能素子では、高電界を加えることでこのイオンを低温で強制的に移動させることが必要になる。

【0047】一致溶解組成の不定比欠陥が多い場合には、空位を通じてLiイオンは拡散移動しやすいもののLiサイトに入った過剰のTaを移動させることは容易ではないため、分極反転には大きな印加電圧が必要となる。このことから、Ta過剰成分(Li₂O/(Ta₂O₅+Li₂O)のモル分率が0.495~0.50)にある結晶よりも、Ta成分過剰の不定比欠陥を完全に排除したLi成分が過剰な定比組成に近いLi単結晶を完全Li成分過剰のLi₂O/(Ta₂O₅+Li₂O)のモル分率が0.500~0.505)が分極反転制御性に優れる。

【0048】本発明は、Li成分が過剰な定比組成に近いLi単結晶として、キュリー温度が686~695℃の範囲にある結晶と同じ特性を示すことを明らかにした。これは、結晶組成を精度良く評価するには高精度に継続した技術による化学分析が必要で測定時間も長くなる。これに対して、例えば結晶組成に特性が大きく依存する示唆熱分析法によるキュリー温度測定は、結晶組成を簡単に管理、評価する方法で有用である。

【0049】また、光損傷についても過剰な成分のTaが問題を引き起こしていることが明らかになった。Li成分が過剰な定比組成に近いLi単結晶(Li₂O/(Ta₂O₅+Li₂O)のモル分率が0.500~0.505)に、あるいはキュリー温度が686~695℃の範囲にある種々のLi単結晶に、光強度が103kW/cm²以上の532nmの連続赤外線光レーザを照射しても、全く光損傷は見られない。

【0050】さらに、従来未解決であったより短波長のレーザ光入射に対しては耐光損傷閾値が向上しており、光強度が103kW/cm²の波長407nmの連続赤外線レーザ照射に対して全く光損傷は見られない。この結晶を基板に用いた光素子も安定に動作できることが明らかになった。

【0051】次に、本発明の光機能素子として用いられるLi単結晶の製造方法を示す。市販の高純度Li₂O₃、Ta₂O₅の原料粉末を準備し、Li成分過剰原料としてLi₂O₃:Ta₂O₅の比が0.60:0.40、0.62:0.38、0.64:0.36、0.66:0.34の割合で混合した。また、別に化学Li

過剰組成原料として、Li₂O₃:Ta₂O₅=0.50:0.50の割合で混合した。次に、1ton/cm²の静水圧でラバープレスで成形し、それぞれの組成比の原料を約1050℃の酸素中で焼結し原料棒を作成した。また、連続供給用粉末原料として混合済みの化学Li過剰組成の連続供給用原料を約1350℃の大気中で焼結して化学Li過剰組成原料も作成した。

【0052】次に、原料運供給二重組成法を用いて定比組成に近いLi過剰のLi単結晶の育成を行った。二重なるつぼ内のLi成分過剰組成の融液(例えば、Li₂O/(Ta₂O₅+Li₂O)のモル分率が0.60、0.62、0.64、0.66)に種々結晶をつき、引き上げ速度0.5mm/h、結晶回転速度20rpmで定比組成に近い、すなわち、不定比欠陥密度を極力抑えた単結晶を得た。不定比欠陥の密度や組成を精製に制御するために、結晶化した成長口に見合ったLi₂O/(Ta₂O₅+Li₂O)のモル分率が0.50の化学Li過剰組成の連続供給用原料を外側坩堝に自動的に供給しながら結晶を育成した。

【0053】ここで、育成に用いた坩堝はイリジウムでできており、外側なるつぼは、直径125mm高さ70mm、内側なるつぼは、直径85mm高さ90mmとした。この場合にも融液組成を均一化させるために、育成に際して坩堝を4rpmの速度で種々組成と反対方向に回転させた。育成条件は結晶回転速度を20rpm、引き上げ速度は0.5mm/hで一定し、育成雰囲気は0.05%酸素を含む真空中とした。

【0054】育成のプロセスにおいては、通常の光学用コングレントした単結晶の育成と同じように、光損傷を誘起する一要因と考えられている酸やクロム等の遷移金属不純物はできるだけ入らないように注意を払った。また、クラックのない無色透明のLi単結晶を得た。得られたアズガロウ結晶の内部の分極状態は多分域状態であった。

【0055】そこで、ポーリングに先立ち、得られたLi単結晶のキュリー温度を示唆熱分析法により求めた。予め、定比組成に適合し1500℃で焼結した定比組成の標準結晶試料を準備し、そのキュリー温度は694℃であることを確認した。

【0056】次に、二重なるつぼ内のLi成分過剰組成の融液(例えば、Li₂O/(Ta₂O₅+Li₂O)のモル分率が0.60、0.62、0.64、0.66)組成から得られたそれぞれのLi単結晶のキュリー温度を測定した。それぞれの結晶のキュリー温度は686~695℃の範囲にあり、この温度は、これまで報告されている定比組成に近い組成のLi単結晶のキュリー温度の675~685℃よりもさらに高温で、しかも、定比組成の標準結晶試料のキュリー温度に近いことがわかった。

【0057】さらに、ここで得られた一本の結晶から切り出した結晶のキュリー温度は、試料の切り出し位置に依らず測定隔壁内で一定で、結晶組成の均質性は極めて

良いことも確認された。また、育成された結晶のキュリー温度は標準焼結試料のキュリー温度の694℃よりも大幅に高くなることはなかった。

【0058】二重層の層内の融液相を $\text{Li}_2\text{O}/(\text{Ta}_2\text{O}_5+\text{Li}_2\text{O})$ のモル分率が0.60より少しずつ、 Li 過剰にしていること、得られた結晶のキュリー温度は徐々に低下している傾向が見られた。このことは、 Li と単結晶のキュリー温度が完全な定比相組成で最大となることを意味している。得られた結晶のキュリー温度の最大値695℃で定比相組成の標準焼結試料のキュリー温度の694℃より高温度にあるのは、示差熱分析法で求めるキュリー温度の測定誤差によるものと考えられる。これらのことから、育成された結晶は完全な定比相組成があるいは Li 成分が定比相よりも過剰である可能性が考えられる。

【0059】そこで、化学分析法により直接組成を分析した。化学分析では組成比の絶対値を精度良く求めることは難しく、 Li と結晶の場合 $\text{Li}_2\text{O}/(\text{Ta}_2\text{O}_5+\text{Li}_2\text{O})$ のモル分率が0.001~0.005程度の誤差を含んでいる。そこで、定比に近い組成の Li と結晶の組成を分析した。同一試料について数カ所の異なる分析位置を用いて評価し、その平均値を求めた。その結果、二重層の層内の Li 成分過剰組成の融液（例えば、 $\text{Li}_2\text{O}/(\text{Ta}_2\text{O}_5+\text{Li}_2\text{O})$ のモル分率が0.60、0.62、0.64、0.66）組成から得られたそれぞれ Li と単結晶の場合、 $\text{Li}_2\text{O}/(\text{Ta}_2\text{O}_5+\text{Li}_2\text{O})$ のモル分率は0.500~0.505の範囲にあり、 Li 成分が過剰な定比組成に極めて近い Li と単結晶であることがわかった。

【0060】次に、得られたそれぞれの結晶をキュリー温度以上の約750℃に加熱した後、結晶のZ軸方向から約5~10V/cmの電圧を印加し、室温まで冷却することで単一分極化した。単一分極化した Li と単結晶から大きなケミカル研磨により表面研磨を行った。試料の光学的均質性をマッハツェンダー干渉法により評価したところ、マクロな欠陥や光学的に不均一な部分は見られず、試料内の屈折率変化は 1×10^{-4} 以下が得られ、光学的均質性に優れていることが確認された。

【0061】このように、 $\text{Li}_2\text{O}/(\text{Ta}_2\text{O}_5+\text{Li}_2\text{O})$ のモル分率が0.500~0.505の範囲にある Li 成分が過剰な定比組成に近い Li と単結晶あるいは前述のキュリー温度が695~695℃の範囲にある Li と単結晶基板は、光学的均質性に優れている。

【0062】本発明者は、前述の Li 成分過剰による不定比欠陥層を抑えた単結晶は、従来の結晶における過剰な Li により形成される多量の欠陥の存在によって、分極反転に必要な印加電圧と自発分極の関係を示すヒステリシス曲線は非対称的になり、しかも、分極反転には数 $\mu\text{V}/\text{nm}$ の高電圧が必要とされるという問題や、結晶内の不均一に分布する欠陥濃度が低いような箇所では分極反転がヒステリシスされやすいため、電圧印加法を用

いても精度よく分極反転することが技術的に困難であるという問題を解決して、光変換素子の高精度な分極反転の形成が図れることを明らかにした。

【0063】次に、育成した種々の単結晶から30mm×30mmで厚みが0.5~3.0mmのカット試料を切り出した。両Z面に電極を形成した後、電圧を印加し、電流流の変化から分極反転電圧を測定した。その結果、図1に示すように、従来の一致溶融組成 Li と単結晶では分極反転に必要な印加電圧が25kV/mm程度（反転電圧の21kV/mmより数kV/mm程度高い値を加える）必要であるのに対して、定比組成に近づくとき2~4kV/mm程度の印加電圧で分極が反転することを確認した。

【0064】この結果は、本発明者らが先に報告した結果と一致している。本発明者らは、さらに、 $\text{Li}_2\text{O}/(\text{Ta}_2\text{O}_5+\text{Li}_2\text{O})$ のモル分率が0.500~0.505の範囲にある Li 成分が過剰な定比組成に近い Li と単結晶試料では、分極反転に必要な印加電圧がさらに少なくて済み、印加電圧が0.5~1kV/mm程度でも分極反転が形成できる試料も得られた。さらに、自発分極-印加電圧のヒステリシスは、完全な対称性を示し、内部電場は測定腔内で0kV/mmであった。このため、分極反転のプロセスは極めて可逆的であり、分極反転プロセスの制御性が優れていることも明らかにとなった。

【0065】このように、同じ定比組成に近い Li と単結晶であっても、若干の Li 過剰成分割合（ $\text{Li}_2\text{O}/(\text{Ta}_2\text{O}_5+\text{Li}_2\text{O})$ のモル分率が0.495~0.50）にある結晶よりも、 Li 成分過剰の不対称欠陥を完全に排除した $\text{Li}_2\text{O}/(\text{Ta}_2\text{O}_5+\text{Li}_2\text{O})$ のモル分率が0.500~0.505の範囲にある Li 成分が過剰な定比組成に近い Li と単結晶において分極反転制御性の大幅な向上が確認できた。

【0066】また、本発明者らは、光極値についても過剰な成分の Li が問題を引き起こしていることに着目した。 $\text{Li}_2\text{O}/(\text{Ta}_2\text{O}_5+\text{Li}_2\text{O})$ のモル分率が0.500~0.505の範囲にある Li 成分が過剰な定比組成に近い Li と単結晶、あるいはキュリー温度が695~695℃の範囲にある種々の Li と単結晶に、波長532nmの連続発振緑色光（コヒーレント光Verdi1）および波長407nmの連続発振紫外光（コヒーレント光Verdi1）および波長407nmの連続発振紫外光（コヒーレント光Verdi1）を照射して光極値の有無を調べた。

【0067】種々の組成の結晶から、約5mm³角の立方体試料を切り出し、x、y、z両面を光学研磨し評価用試料を準備した。結晶のy軸、およびx軸方位から上記レーザー光をレンズで絞って光強度を $10^{-3} \sim 10^3 \text{ W/cm}^2$ の範囲で強度を少しずつ変えて照射して、結晶を通してレーザー光のビームプロファイルをフィルターを通してビームプロファイラー（浜松フオートニクス社製）で観察した。レーザーの照射方向は結晶のz軸方向と平行とした。【0068】光極値が起きると結晶のz軸方向にビームが広がりが形状ゆがみ（ビームファニング）ので、10分間の照射中にビームファニングが発生して観察され

た場合、その入射光強度を光極値閾値として定義した。図2に示すように、若干の Li 過剰成分割合（ $\text{Li}_2\text{O}/(\text{Ta}_2\text{O}_5+\text{Li}_2\text{O})$ のモル分率が0.495~0.50）にある結晶では、試料によって耐光極値は2倍以上大きく変動している

た。この耐光極値閾値は結晶の熱処理状態に大きく依存していた。

【0069】すなわち、 Li イオンサイトを置換する過剰な Li イオンが還元された状態で誘起されるポラロンに起因した光吸収が耐光極値閾値を低下させる一因であると考えられた。これに対して、 $\text{Li}_2\text{O}/(\text{Ta}_2\text{O}_5+\text{Li}_2\text{O})$ のモル分率が0.500~0.505の範囲にある Li 成分が過剰な定比組成に近い Li と単結晶では、いずれの結晶の場合にも入射光強度が 10^3 W/cm^2 としても損傷は全く見られず、この結晶を基板に用いた光素子の安定な動作が期待できるとが明らかになった。この場合には、 Li イオンサイトを置換する過剰な Li イオンが存在しないため、還元された状態でもポラロンは誘起されないと考えられる。

【0070】なお、これまでに若干の Li 過剰成分割合（ $\text{Li}_2\text{O}/(\text{Ta}_2\text{O}_5+\text{Li}_2\text{O})$ のモル分率が0.495~0.50）にある結晶では、安定して光極値に強い結晶を提供するためには Li などの添加物を加えることが必要であった。これに対し、 Li 成分過剰なタンタル酸リチウム単結晶では、 Li などの添加物を加えることなく耐光極値閾値が高いこととは、実用上大きな利点である。

【0071】この理由は、 Li を含んだ Li と単結晶の生産において、副元素を結晶内に均一に分布させず化学的品質を劣化させずに結晶を育成するために、無添加結晶の場合に比べて結晶育成速度を遅くしなければならず、生産性が悪くなるという問題があった。さらに、 Li を含んだ結晶では分極反転特性が無添加結晶とは異なるため、制御性が悪くなるという問題があったが、本発明によりこれらの問題を解決することが可能となった。

【0072】
【実施例1】以下実施例を用いて、本発明をさらに具体的に説明する。

上記の方法で作成した Li と単結晶を用いる光変換素子の一つとして、光変換素子に適用した場合の特性について説明する。図3は上述の方法で作成したところの組成 $\text{Li}_2\text{O}/(\text{Ta}_2\text{O}_5+\text{Li}_2\text{O})$ のモル分率が0.500~0.505の範囲にある Li 成分が過剰な定比組成に近い Li と単結晶、あるいはキュリー温度が695~695℃の範囲にある種々の Li と単結晶を基板に用いて、基板上に周期的分極反転構造を形成したOPMデバイス（微細構造図）である。

【0073】両面光学研磨された厚み0.5mm~3.0mmの基板1の+z面に微細構造と平行電極をバターンニングした。周長は約3.2 μm で、波長890nmに対して位相位相整合するように設計された。-z面は、電極を全面に蒸着した。微細電極と平行電極の間、および微細電極と-z

面の両面電極に、それぞれ電圧を印加し、周期的分極反転領域2を形成した。

【0074】用いた Li と結晶は、分極状態は予め非常に均一化されている。結晶に周期的分極反転を形成する際にも、 $\text{Li}_2\text{O}/(\text{Ta}_2\text{O}_5+\text{Li}_2\text{O})$ のモル分率が0.500~0.505の範囲にある Li 成分が過剰な定比組成に近い Li と単結晶、あるいはキュリー温度が695~695℃の範囲にある種々の Li と単結晶においては、結晶の均一性に優れているため、均一な分極反転構造の形成が可能になる。通常のコングルエント組成の Li と結晶では、結晶内に小さな分極反転域（マイクロドメイン）が多数存在するため、微細な分極反転構造を形成する場合、マイクロドメインによる分極反転形状の不均一性が生じる。さらに、本発明の Li と単結晶基板においては周期的分極反転構造の短周期化が容易であるという特徴を有する。

【0075】従来のコングルエント組成 Li と結晶では、分極反転に必要な印加電圧が25kV/mm程度（反転電圧の21kV/mmより数kV/mm程度高い値を加える）と非常に大きいため、絶縁破壊を避けるため電極間隔を0.5mm以下に低減する必要がある。さらに、電極周辺部での電界の発生によりマイクロドメインを介して分極反転部が電極周辺部に拡大する傾向があり、短周期の分極反転構造を形成するのが難しくなった。短周期でも3 μm 程度の反転構造を形成するのが難しくなかった。

【0076】これに対し、上述の方法で作成した $\text{Li}_2\text{O}/(\text{Ta}_2\text{O}_5+\text{Li}_2\text{O})$ のモル分率が0.500~0.505の範囲にある Li 成分が過剰な定比組成に近い Li と単結晶は、反転に必要な印加電界が0.5~2kV/mm程度と従来の1/12~1/25以下となり、バルク素子としての基板厚みも拡大できた。【0077】以上のように、上述の方法で作成した Li と単結晶は、結晶内の分極構造が非常に均一であり、マイクロドメインが非常に少ないため、電極周辺部への分極反転の拡大が防止でき、従来は約3 μm を超えていたが、本発明では2 μm 以下の短周期分極反転構造の形成も容易にできることがわかった。

【0078】分極反転格子を形成した後、結晶を取り外し、側面となる結晶のy面を研磨、フッ酸・硝酸の混合液でエッチングして、分極の反転の様子を調べた。周期的分極反転幅およびその分極の形は印加電圧のバルス幅や電流を最適化することで、試料全体にわたって周期的分極反転幅比を理想的な1:1に精度よく作成することができていることが確認された。

【0079】図3に示したOPM-848素子では、従来問題とされていた分極幅が横方向に広がることも押さえられ、また、この周期的分極反転構造の形成は厚み0.5mmの試料のみならず、より厚い他の試料についても同様の高精度に形成されており、これらの厚い試料は、例えば、内部共振型の波長変換素子として最適であると考えられる。次に、ウェハを切り出して端面研磨した試料を作成した。

【0080】 効率的な波長変換のために、OPV-SiG素子は基本波となるレーザと共振器内に挿入するが、あるいは基本波と波長変換した基本波の半導体層を閉じ込める光導波路を形成して、素子長10mmの試料で約50%の波長変換効率で安定したSiG出力の発生を確認した。OPV-SiG素子の特性の評価は、基本波として、波長可変波長レーザー（出力1[W]ファイバーレーザー（波長650nm）4が用いられ、レンズ5を用いて光結合を行った。定比した結晶は、2倍以上の非線形光強度を有し、基板の非線形光学特性が向上したため、効率的な光波長変換素子が形成できた。

【0081】さらに、日光照射強度の大幅な向上と安定性を取現した場合、従来の16分過熱処理の工程時間を400mm以上の白色光（波長：400nm）を利用した場合、数10倍以上の出力の不安定性が生じ（帯）を出力すると、光照射による出力の不安定性が生じていた。すなわち、従来の一政用樹脂成形品を基板として用いたDPH-SHの素子で、この光照射のために高出力を発生した場合に、ときおりUV6出力が時間とともに低下する現象は見られた。

【0082】これに対し、上述の方法で作成した $\text{Li}_2\text{O}/(\text{Ta}_2\text{O}_5+\text{Li}_2\text{O})$ のモル分率が0.500~0.505の範囲にあるLi成分が過剰な定比組成に近い単結晶を用いることで500nm以上の青色光に対しても、安定な出力が得られるようにした。特に、波長が415nm以下のSHG光に対して、西光強度の向上は顕著に現れた。

【0083】この理由としては、まず1つめに、本発明の組成成分として、不定水乾燥度が従来の一般用プラスチック結晶品に比べて遥かに高いため、フォトリソ加工の際に溶剤を吸い取り膨らみやすくなる。また、フォトリソ加工の際に溶剤が蒸発し、その際に溶剤が凝縮して微粒子を生じることがある。フォトリソ加工の際に溶剤が蒸発し、その際に溶剤が凝縮して微粒子を生じることがある。フォトリソ加工の際に溶剤が蒸発し、その際に溶剤が凝縮して微粒子を生じることがある。

【0084】つめは、 I_{B} 過剰成分を含まない $i_{20}/(I_{20}+0.5g_{\text{B}}+i_{20})$ のモル分率が0.50より大きく i_{B} 成分過剰なタ
過剰な I_{B} イオン塩結品では、 I_{B} イオンサイトを置換す
る過剰な I_{B} イオンが存在しないため、還元された状態で
も光吸収の原因となる g_{B} ラロンは誘起されないためであ
ると考えられる。

【0085】つめは、本発明の分極回転素子では分極反転幅が数ミクロンと小さく、かつ、その比が完全に1:1に形成されているために、たとえ、材料の光損傷が多少存在したとしても、軸方向に異方性を持つ光損傷が検出されず、分極面間で相殺されるということである。

【0086】4つめは、定比組成結晶では不定比欠陥濃度が小さいことから、光散乱因子やストリエーションなどのマクロな結晶欠陥がほとんど含まれず、結晶の光吸収が非常に小さいことである。

【0087】特に、高出力のSHG素子では、基本波や高調波による光吸収の増加から熱レンズ効果による光損傷

も発生する可能性があるが、結晶の完全性が高く、光散
射の小さい安定化超結晶ではこれらの問題も解決され
られると理解される。また、ここでは、850nmの近赤外
光の基本波に対して青色光を発生する0.04μm-SiGe系を
作成した実験例について詳しく述べるが、本発明によ
れば、基本波がこの二つの波長に属するとはなく、 λ_1 と λ_2
の結晶が適用で、かつ位相整合が可能である波長域に属し
て適用することが可能である。

〔0088〕さらに、本発明の λ_1 と λ_2 結晶の分極構造を
周期的に反転させ、可視から近赤外域の波長を持った入
射レーザーの波長を短波長化あるいは長波長化する光機
械素子は、第二高調波発生素子に限らず、光パラメトリ
ック発振器など、リモートミッキング、ガス検知等有
はじめとする各種の応用分野での適用が可能である。

【0089】実施例2
 分母に、上述の方法で作成した $\text{Li}_2\text{O}/(\text{Ta}_2\text{O}_5 + \text{Li}_2\text{O})$ のモル比が40、500〜0.505の範囲にある成分が過剰な定比組成に近いして単結晶に、レンズやプリズム状の分極反転構造を作製し、電気光学効果を利用して偏光素子や、シリンドリカルレンズ、ビームスキャナー、スイッチなどの光素子を製作した。

【0090】図4は、周期的分極反を形成した波長選択素子8とレンズ9、10やプリズム状11の分極反特長を有する複合体を形成した構成図である。直交2インチ、厚み0.2、0mm、両面面附されたz-カットのLi成分過剰した結晶品を準備し、両z面に厚さ約0.2ミクロンのAl電極をスパッタリングにより形成し、リタグラフを用いて、レンズ状パターンを形成した。その後、+z面にバブル状の電圧を約0.5~2.0kV/mm印加して反応させた。

【0091】さらに、熱処理を施し、分極反転に際して導入されるといわれている屈折率の不均一性を解消させ、さらに、結晶の端面を研磨し磨上げを行い、レーザ光の入射面とした。試作した分極反転構造による屈折率の入射出面とした。研磨した分極反転構造を利用した光素子の性能は、レンズやプリズム状の分極反転構造の設計や分極反転構造の作製プロセスの精度、および材料の持つ電気光学定数の大きさに決定された。ここで試作したレンズやプリズム形状の分極反転構造で、特許すべきことは、分極反転性電界が低く、かつ分極反転性の制御が非常に容易であることから良好な素子特性が得られたことである。

【0092】従来の一致溶解組成のLST結晶では分層反転に大きな印加電圧が必要のために分層反転構造の制御が困難であった。また定比組成に近くTaを添加した結晶に少量のMg、Oを添加した結晶では反転周期が短く、分層構造が複雑になると、精度の良いレンズやプリズム状の分層反転構造の作製は困難だった。

【0093】これに対し、上述の方法で作成したLi20 /

(Ta₂O₅+i1₂O)のモル分率が0.500~0.505の範囲にあるi成分が過剰な定比組成に近い単結晶、あるいはキュリ温度が686~695℃の範囲にあるタンタル酸チタン単結晶基板を分極化転写を利用して光機能素子用途として用いることにより、光機能素子の高精度な分極化転写の形成が可能であった。

【0094】さらに、西光増幅特性も問題とならないため、青紫～緑色の短波長光を用いる光増幅素子として、レーンズやプリズム状の分岐反転構造を作製し、電気光学効果を利用して偏角素子やシリンダ形カルレンズ、ビームスキャナ、スイッチなどの光素子を製作した場合にも、光増幅によるビーム変形の問題はなかった。

【0095】さらに、本結晶は一致溶融組成の結晶よりも大きな電気光学定数33を有しているのも、より小さな動作電圧でより優れたデバイス性能が得られる。例えば偏角素子の場合には約600V/mmの電圧で約6°で大きな偏角角が得られる。また、約100V/mm近傍で動作するレンズや、約500V/mmでのスリッチング動作も得られた。

次に、上述の方法で作成した $\text{Li}_2\text{O} / (\text{Ta}_2\text{O}_5 + \text{Li}_2\text{O})$ のモル分率が約 0.500 ~ 0.505 の範囲にある Li 成分が過剰な定比結晶に近い T 単結晶を用いて、L T 単結晶の微少分離反転部を用いた光記憶素子の作成方法を図 5 の概念図に示す。

【0096】既に述べたように、本発明の「成分過剰な」 L 単結晶は、従来の「成分過剰な」 L 単結晶に比べて容易に分相転換が形成できるという特徴を持つ。さらに、 L 単結晶自体は、アズクロウン状態では多分域状態であるが、それぞれの分域の大きさは数ミクロン程度以下と小さく、 L 単結晶の分域の大きさは数 μm ～数 cm 以下と格段に小さい。このことは、 L 単結晶自体が L 単結晶より数ミクロン以下の微小な分域形成が容易であるという特徴を示唆している。

【0097】そこで、図5に示すように、厚み0.2~1mm、大きさ10mm×20mm角の両面研磨されたムカッティロ成分を割なし丁結晶14を準備し、図5に示すように、+2面から、マクスウェル・ストレスを利用した走査型顕微鏡を用いて、微小領域に電圧を加えその部分17の分極方向を反転させた。

【0098】この方法では、結晶の一面に付着した電圧15と伝導性のチップ16に印加する交流電場に加え、結晶に分離反転に、微小な振動が誘起した電界によって、結晶に分子、原子や、誘導電界の励起状態と相おおよび結晶の分極状態をレーザ18と受光素子9を用いて観察した。この方法を用いて、定出し生成した超流動の単結晶内にミクロン程度の幅で2次元情報を書き込み、配する強い誘電体分極を利用して光素子を得ることができることを確認した。

